

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2005 年 6 月 23 日 (23.06.2005)

PCT

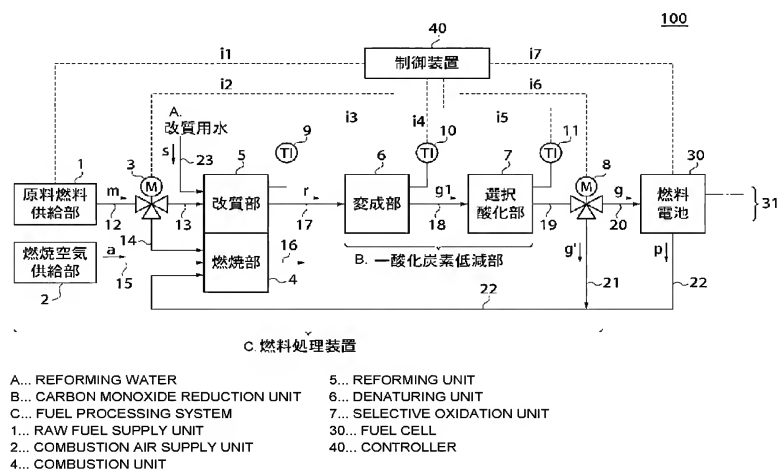
(10) 国際公開番号
WO 2005/057705 A1

- (51) 国際特許分類: **H01M 8/04, 8/06** (72) 発明者; および
(21) 国際出願番号: PCT/JP2004/018496 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 蘇 慶泉 (SU, Qingquan) [CN/JP]; 〒1440042 東京都大田区羽田旭町 1 1-1 荏原バラー株式会社内 Tokyo (JP). 堀江 俊博 (HORIE, Toshihiro) [JP/JP]; 〒1440042 東京都大田区羽田旭町 1 1-1 荏原バラー株式会社内 Tokyo (JP). 安藤 正樹 (ANDO, Masaki) [JP/JP]; 〒1440042 東京都大田区羽田旭町 1 1-1 荏原バラー株式会社内 Tokyo (JP). 芳我 尚秀 (HAGA, Takahide) [JP/JP]; 〒1440042 東京都大田区羽田旭町 1 1-1 荏原バラー株式会社内 Tokyo (JP).
(22) 国際出願日: 2004 年 12 月 10 日 (10.12.2004)
(25) 国際出願の言語: 日本語
(26) 国際公開の言語: 日本語
(30) 優先権データ: 特願 2003-413324
2003 年 12 月 11 日 (11.12.2003) JP
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 荏原バラー株式会社 (EBARA BALLARD CORPORATION) [JP/JP]; 〒1440042 東京都大田区羽田旭町 1 1-1 Tokyo (JP).
(74) 代理人: 宮川 貞二, 外 (MIYAGAWA, Teiji et al.); 〒1600005 東京都新宿区愛住町 1 9 番地 富士ビル 6 階 Tokyo (JP).

[続葉有]

(54) Title: METHOD OF OPERATING FUEL CELL SYSTEM AND FUEL CELL SYSTEM

(54) 発明の名称: 燃料電池システムの運転方法及び燃料電池システム



(57) Abstract: A fuel cell system whose construction is simple without the use of any assist combustion system; and a method of startup and operation control thereof; and a highly reliable fuel cell system capable of safe operation. There is provided a fuel cell system including reforming unit (5) capable of reforming raw fuel (m) into reformed gas (r); combustion unit (4) capable of combusting the raw fuel and heating the reforming unit; carbon monoxide reduction unit (6,7) capable of reducing the content of carbon monoxide in the reformed gas to thereby produce gas with reduced content of carbon monoxide (g); and fuel cell (30) using the gas with reduced content of carbon monoxide as a fuel gas, wherein the raw fuel is fed to the combustion unit so as to heat the reforming unit to a given temperature, wherein subsequently the feeding of raw fuel to the combustion unit is terminated and the raw fuel is fed to the reforming unit so as to produce reformed gas, and wherein the reformed gas is introduced in the carbon monoxide reduction unit so as to heat the carbon monoxide reduction unit and the gas with reduced content of carbon monoxide produced by the carbon monoxide reduction unit is introduced in the fuel cell to thereby generate electric power.

(57) 要約: アシスト燃焼系を備えることなくシステム構成が簡単な燃料電池システムと、その起動及び運転制御方法を提供し、信頼性の高い安定運転ができる燃料電池システムを提供する。原料燃料mを改質して改質ガスrを生成する改質部5と、原料燃料を燃焼して改質部を加熱する燃焼部4と、改質ガス中の一酸化炭素を低減して一酸化炭素

[続葉有]



(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ,

BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

低減ガス g を生成する一酸化炭素低減部 6、7 と、一酸化炭素低減ガスを燃料ガスとする燃料電池 30 とを備える燃料電池システムにおいて、原料燃料を燃焼部に供給して改質部を所定の温度に加熱し、続いて、原料燃料の燃焼部への供給を停止し、原料燃料を改質部に供給して改質ガスを生成し、改質ガスを一酸化炭素低減部に導入して一酸化炭素低減部を加熱し、続いて、一酸化炭素低減部で生成した一酸化炭素低減ガスを燃料電池に導入して発電する。

明 細 書

燃料電池システムの運転方法及び燃料電池システム

技術分野

[0001] 本発明は、燃料電池システムに関し、特に、燃料電池システムの起動及び制御方法に関する。

背景技術

[0002] 都市ガス、LPG、消化ガス、メタノール、GTLや灯油のような原料燃料を改質して水素に富む燃料ガスを生成し、燃料電池のアノード極(燃料極)に供給すると共に、空気等の酸素を含む酸化剤ガスを燃料電池の空気極に供給して電気化学的反応により発電する燃料電池発電システムにおいて、システムは安定的に運転されることが要求される。そこで、外乱に対しても安定的に運転されるためのシステム構成の構築が必要となるが、安定運転を保証するためのシステム構成が複雑になれば、外乱要因が却って増加し、システム全体の信頼性や経済性の低下を招来する結果にもなりかねない。

[0003] また、原料燃料を改質する改質装置では、改質反応が吸熱反応であるため、装置を所定の温度に加熱する必要がある。従来の燃料電池発電システムでは、原料燃料を補助燃料として改質装置の燃焼部に供給するいわゆるアシスト燃焼の手段を備え、原料燃料流量計の指示誤差等の外乱による改質部温度等の変動に対してアシスト燃焼の燃焼量を増減することにより燃焼部および改質部の温度を所定の温度に維持し、燃料電池発電システムの運転を安定させていた。

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0004] しかしながら、アシスト燃焼を行うにはアシスト燃料供給部等が必要になるので、システムの構成が複雑になり消費電力も増加するという課題があった。また、家庭用燃料電池発電システムのような1〜数kWの小規模発電システムの場合、アシスト燃焼の燃焼量が少ないので、とりわけ原料燃料が液体燃料のときに極めて微小な流量を定量的且つ正確に送出できる高度のアシスト燃料供給手段が求められていた。また

、微少な流量を正確に定量的に送れない場合には、逆にアシスト燃焼自体が外乱要因になるという外乱要因を増加することにもなっていた。更に、原料燃料を燃焼するアシスト燃焼はとりわけ原料燃料が液体燃料の場合NO_xや煤を発生し易く、環境性の面でも好ましくないものであった。

そこで、本発明は、アシスト燃焼系を備えることなくシステム構成が簡単な燃料電池システムと、その起動及び運転制御方法を提供し、信頼性の高い安定運転できる燃料電池システムを提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0005] 上記の目的を達成するために、本発明に係る燃料電池システムの運転方法では、例えば図1及び図2に示すように、原料燃料mを改質して改質ガスrを生成する改質部5と、原料燃料mを燃焼して改質部5を加熱する燃焼部4と、改質ガスr中の一酸化炭素を低減して一酸化炭素低減ガスgを生成する一酸化炭素低減部6、7と、一酸化炭素低減ガスgを燃料ガスとする燃料電池30とを備える燃料電池システム100の運転方法であって、原料燃料mを燃焼部4に供給して改質部5を所定の温度に加熱する第1の予熱工程(ステップST2)と、第1の予熱工程(ステップST2)に続いて、原料燃料mの燃焼部4への供給を停止(ステップST4)し、原料燃料mを改質部5に供給して改質ガスrを生成し、改質ガスrを一酸化炭素低減部6、7に導入して一酸化炭素低減部6、7を加熱する第2の予熱工程(ステップST6)と、第2の予熱工程(ステップST6)の後に、一酸化炭素低減部6、7で生成した一酸化炭素低減ガスgを燃料電池30に導入して発電する発電工程(ステップST10)とを備える。

[0006] このように構成すると、アシスト燃焼系を備えなくても、原料燃料を燃焼部に供給して改質部を加熱し、加熱された改質部の蓄熱により原料燃料を改質部に供給して改質ガスを生成し、改質ガスにより一酸化炭素低減部を加熱し、一酸化炭素低減ガスを生成して発電を開始することで、燃料電池システムを起動することができる。また、アシスト燃焼系を有さず、原料燃料を燃焼部に供給して直接に燃焼するのが第1の予熱工程だけであるので、原料燃料を燃焼する時間が短く、原料燃料を燃焼したときに発生するNO_xや煤の発生量が少なくなり、環境性の高い燃料電池システムの運転方法となる。

- [0007] また、本発明に係る燃料電池システムの運転方法は、例えば図1及び図2に示すように、燃料電池システム100の運転方法において、一酸化炭素低減部6、7の温度が所定の温度以上となったとき(ステップST7)に、第2の予熱工程(ステップST6)から発電工程(ステップST10)へ移行してもよい。
- [0008] このように構成すると、一酸化炭素低減部が所定の温度まで予熱され、改質ガスから一酸化炭素を除去する状態になってから生成された一酸化炭素低減ガスを燃料電池に供給するので、一酸化炭素の存在のために燃料電池の発電効率が低下することがない。
- [0009] 前記の目的を達成するために、本発明に係る燃料電池システムの運転方法は、例えば、図1及び図3に示すように、原料燃料mを供給する原料燃料供給部1と、原料燃料mを改質して改質ガスrを生成する改質部5と、改質ガスr中の一酸化炭素を低減して一酸化炭素低減ガスgを生成する一酸化炭素低減部6、7と、一酸化炭素低減ガスgを燃料ガスとする燃料電池30と、燃料電池30のオフガスpを燃焼して改質部5を加熱する燃焼部4とを備える燃料電池システム100の運転方法であって、改質部5の温度を検知し、検知された温度Taを所定の第1の温度A1及び所定の第2の温度A2と比較する改質部温度比較工程(ステップST11、ST12)と、改質部温度比較工程(ステップST11)における検知された温度Taが前記第1の温度A1以下のときに燃料電池30において発電電流を低減する工程(ステップST22)であって、発電電流を低減した後所定の時間t1は発電電流を保持(ステップST23)する電流低減工程と、改質部温度比較工程(ステップST12)における検知された温度Taが第2の温度A2以上のときに、燃料電池30において発電電流を増大する工程(ステップST32)であって、発電電流を増大した後所定の時間t2は発電電流を保持(ステップST33)する電流増大工程とを備える。
- [0010] このように構成すると、改質部の温度が所定の第1の温度以下となった場合に、燃料電池での発電電流を低減し、その結果燃料電池のオフガス中の水素含有量が増加し、燃焼部の燃焼発熱量が多くなり、改質部がより加熱され温度が上昇する。また、改質部の温度が所定の第2の温度以上となった場合に、燃料電池での発電電流を増大し、その結果燃料電池のオフガス中の水素含有量が減少し、燃焼部の燃焼発

熱量が少なくなり、改質部の温度が低下する。更に、発電量電流を低減しあるいは増大した後は、所定の時間更なる発電電流の変動を行わないため、システムが不安定になることが防止される。

- [0011] また、本発明に係る燃料電池システムの運転方法は、例えば図3に示すように、燃料電池システム100の運転方法において、電流低減工程の連続実施回数N1が所定回数n1に達したときに、原料燃料供給部1からの原料燃料mの供給量を増加する燃料増加工程(ステップST26)と、電流増大工程の連続実施回数N2が所定回数n2に達したときに、原料燃料供給部1からの原料燃料mの供給量を減少する燃料減少工程(ステップST36)とを備えてもよい。
- [0012] このように構成すると、燃料電池での発電電流の所定積分量(1回当りの増減量のn1、n2倍)の低減あるいは増大だけでは改質部の温度が所定の温度とならない場合に、発電電流の所定積分量に相当する分の原料燃料を増加しあるいは減少することにより、改質部の温度が所定の温度となり、システムとして一定の発電電流範囲、すなわち一定の発電量の範囲において安定した運転がなされる。
- [0013] また、前記の目的を達成するために、本発明に係る燃料電池システムは、例えば図1に示すように、原料燃料mを供給する原料燃料供給部1と、原料燃料mを改質して改質ガスrを生成する改質部5と、改質ガスr中の一酸化炭素を低減して一酸化炭素低減ガスgを生成する一酸化炭素低減部6、7と、一酸化炭素低減ガスgを燃料ガスとする燃料電池30と、原料燃料m、一酸化炭素低減ガスgまたは燃料電池のオフガスpを燃焼して改質部5を加熱する燃焼部4と、原料燃料mを燃焼部4に供給する流路12、14と、原料燃料mを改質部5に供給する流路12、13と、一酸化炭素低減ガスgを燃料電池30に供給する流路19、20と、一酸化炭素低減ガスgを燃焼部4に供給する流路21、22と、燃料電池30のオフガスpを燃焼部4に供給する流路22と、原料燃料mを燃焼部4に供給する流路14と改質部5に供給する流路13とを切り替える第1の流路切替手段3と、一酸化炭素低減ガスgを燃料電池30に供給する流路20と燃焼部4に供給する流路21とを切り替える第2の流路切替手段8とを備える。
- [0014] このように構成すると、原料燃料を燃焼部に供給して改質部を所定の温度に加熱し、第1の流路切替手段により流路を切り替えて、原料燃料を改質部に供給して改質

ガスを生成することができる。第1の流路切替手段を切り替えた際に、一酸化炭素低減ガスが燃焼部に供給されるまでの間燃焼部への燃料供給が途絶えるので、一旦燃焼部が失火し改質部への熱の供給が止まるが、改質部の温度が改質反応に必要な最低温度以下に下がらないように切替時の改質部の所定の温度を設定し、また、燃料供給が途絶える時間が短くなるように構成されているので、改質反応は継続される。また、改質ガスを一酸化炭素低減部に導入して一酸化炭素低減部を加熱し、一酸化炭素低減部の温度が十分に上昇する前のガスは燃焼部に供給し、十分に上昇した後に第2の流路切替手段を切り替えて、一酸化炭素低減ガスを燃料電池に導入して発電する燃料電池システムとなる。また、第2の流路切替手段を切り替えた際に、燃料電池のオフガスが燃焼部に供給されるまでの間燃焼部への燃料供給が途絶えるので、一旦燃焼部が失火し改質部への熱の供給が止まるが、改質部の温度が改質反応に必要な最低温度以下に下がらないように切替時の改質部の所定の温度を設定し、また、燃料供給が途絶える時間が短くなるように構成されているので、改質反応は継続される。更に、アシスト燃焼系を有さず、原料燃料を燃焼部に供給して直接に燃焼するのが第1の予熱工程だけであるので、原料燃料を燃焼する時間が短く、原料燃料を燃焼したときに発生するNO_xや煤の発生量が少なくなり、環境性の高い燃料電池システムとなる。

[0015] 更に、本発明に係る燃料電池システムは、例えば図1に示すように、燃料電池システム100において、改質部5の温度を検知する改質部温度検知器9と、一酸化炭素低減部6、7の温度を検知する一酸化炭素低減部温度検知器10、11と、改質部温度検知器9で検知された温度と比較される第1、第2及び第3の温度並びに一酸化炭素低減部温度検知器10、11で検知された温度と比較される第4の温度を記憶する記憶部と、起動時に、原料燃料mを燃焼部4に供給して改質部温度検知器9で検知された温度が第3の温度以上となると、原料燃料mの燃焼部4への供給を停止し、原料燃料mを改質部5に供給して改質ガスrを生成し、改質ガスrを一酸化炭素低減部6、7に導入して一酸化炭素低減部6、7を加熱し、また、一酸化炭素低減部温度検知器10、11で検知された温度が第4の温度以上となると、一酸化炭素低減部6、7で生成される一酸化炭素低減ガスgを燃料電池30に導入し発電を開始する制御を行

い、通常運転時に、改質部温度検知器9で検知された温度が第1の温度以下のときに燃料電池30において発電電流を低減するが、発電電流を低減した後所定の時間は発電電流を保持し、また、改質部温度検知器9で検知された温度が第2の温度以上のときに、燃料電池30において発電電流を増大するが、発電電流を増大した後所定の時間は発電電流を保持し、且つ、連続して発電電流を低減あるいは増大した回数が所定の回数に達すると原料燃料部1から供給する原料燃料mの供給量を増加あるいは減少する制御を行う制御部とを有する制御装置40とを備えてもよい。

[0016] このように構成すると、起動時に、原料燃料を燃焼部に供給して改質部を加熱し、改質部が所定の第3の温度以上となると、第1の流路切替手段を切り替えて、原料燃料を改質部に供給し改質ガスを生成し、改質ガスを導入して一酸化炭素低減部を加熱し、一酸化炭素低減部が所定の第4の温度以上になると一酸化炭素低減ガスを燃料電池に導入して発電を開始する運転が制御装置により実現される燃料電池発電システムとなる。また、通常運転時に、改質部の温度が所定の第1の温度以下となったときに、燃料電池での発電電流を低減して改質部の温度を上昇させ、改質部の温度が所定の第2の温度以上となったときに、燃料電池での発電電流を増大して改質部の温度を低下させ、所定連続回数の発電電流の低減あるいは増大により改質部の温度が所定の温度とならない場合には原料燃料の供給量を増加しあるいは減少する運転が制御装置により実現される燃料電池システムとなる。

[0017] この出願は、日本国で2003年12月11日に出願された特願2003-413324号に基づいており、その内容は本出願の内容として、その一部を形成する。

本発明は以下の詳細な説明によりさらに完全に理解できるであろう。本発明のさらなる応用範囲は、以下の詳細な説明により明らかとなろう。しかしながら、詳細な説明及び特定の実例は、本発明の望ましい実施の形態であり、説明の目的のためにのみ記載されているものである。この詳細な説明から、種々の変更、改変が、本発明の精神と範囲内で、当業者にとって明らかであるからである。出願人は、記載された実施の形態のいずれをも公衆に献上する意図はなく、改変、代替案のうち、特許請求の範囲内に文言上含まれないかもしれないものも、均等論下での発明の一部とする。

本明細書あるいは請求の範囲の記載において、名詞及び同様な指示語の使用は

、特に指示されない限り、または文脈によって明瞭に否定されない限り、単数および複数の両方を含むものと解釈すべきである。本明細書中で提供されたいずれの例示または例示的な用語(例えば、「等」)の使用も、単に本発明を説明し易くするという意図であるに過ぎず、特に請求の範囲に記載しない限り、本発明の範囲に制限を加えるものではない。

発明の効果

- [0018] 本発明によれば、アシスト燃焼系を備えることなく、システムの起動を行うことができ、また、外乱に対しても安定した運転が行われる、システム構成が簡単で、信頼性並びに環境性の高い燃料電池発電システムの運転方法並びに燃料電池発電システムが提供される。

図面の簡単な説明

- [0019] [図1]本発明の実施の形態である燃料電池発電システムを説明するブロック図である。
- [図2]本発明の実施の形態である燃料電池発電システムの起動時の制御方法を説明するフロー図である。
- [図3]本発明の実施の形態である燃料電池発電システムの通常運転時の制御方法を説明するフロー図である。

符号の説明

- [0020]
- | | |
|----|-------------------------|
| 1 | 原料燃料供給部 |
| 2 | 燃焼空気供給部 |
| 3 | 三方弁(第1の流路切替手段) |
| 4 | 燃焼部 |
| 5 | 改質部 |
| 6 | 変成部(一酸化炭素低減部) |
| 7 | 選択酸化部(一酸化炭素低減部) |
| 8 | 三方弁(第2の流路切替手段) |
| 9 | 改質部温度検知器 |
| 10 | 変成部温度検知器(一酸化炭素低減部温度検知器) |

11 選択酸化部温度検知器(一酸化炭素低減部温度検知器)

12 原料燃料吐出配管

13 原料燃料供給配管

14 原料燃料燃焼配管

15 酸化剤ガス配管

16 燃焼部排気配管

17 改質ガス配管

18 変成ガス配管

19 燃料ガス吐出配管

20 燃料ガス供給配管

21 改質ガス燃焼配管

22 燃料電池オフガス配管

22 改質用水供給配管

30 燃料電池

31 電力ケーブル

40 制御装置

a 燃焼空気

A、B、C 起動時の改質部所定温度(第3の温度)、変成部所定温度(第4の温度)、
選択酸化部所定温度(第4の温度)

A1、A2 第1の温度、第2の温度

a1、a2 発電電流値の所定低減・増大量

g、g1 燃料ガス、変成ガス

g' 燃焼用ガス

i1～i7 制御信号

m 原料燃料

N1、N2 発電電流を低減・増大した連続回数

n1、n2 発電電流を低減・増大した連続回数の所定回数

r 改質ガス

Ta 改質部温度

Tb、Tc 変成部温度(一酸化炭素低減部温度)、選択酸化部温度(一酸化炭素低減部温度)

TI 温度検知器

t1、t2 所定時間

発明を実施するための最良の形態

[0021] 以下、図面を参照して、本発明の実施の形態について説明する。なお、各図において、互いに同一又は相当する装置には同一符号を付し、重複した説明は省略する。なお、図1中、破線は制御信号を表す。

[0022] 図1は、本発明の実施の形態である燃料電池発電システム100を説明するブロック図である。燃料電池発電システム100は、都市ガス、灯油などの原料燃料mを供給する原料燃料供給部1と、原料燃料mを燃焼するための燃焼空気aを供給する燃焼空気供給部2と、原料燃料mを改質して水素に富む改質ガスrを生成する改質部5と、改質部5を加熱する燃焼部4と、改質ガスrの変成反応を行う一酸化炭素低減部の前段部としての変成部6と、変成反応した改質ガスg1の一酸化炭素選択酸化反応を行う一酸化炭素低減部の後段部としての選択酸化部7と、一酸化炭素低減ガスとしての水素に富むガスgを燃料ガスとして発電を行う燃料電池30とを備える。また、燃料電池発電システム100は、燃料供給部1から供給される原料燃料mを改質部5に供給する流路13と燃焼部4に供給する流路14との切替を行う第1の流路切替手段としての三方弁3と、選択酸化部7から導出されるガスを燃料ガスgとして燃料電池30に供給する流路20と燃焼用ガスg'として燃焼部4に供給する流路21とを切り替える第2の流路切替手段としての三方弁8とを備える。また、燃料電池発電システム100は、改質部5の温度を検知する改質部温度検知器9と、変成部6の温度を検知する変成部温度検知器10と、選択酸化部7の温度を検知する選択酸化部温度検知器11と、これらの温度に基づいて原料燃料供給部1からの原料燃料供給量と三方弁3、8の作動とを制御する制御装置40とを備える。

[0023] 原料燃料供給部1から三方弁3に配管12が敷設され、三方弁3で改質部5に接続する配管13と燃焼部4に接続する配管14とに分岐する。また、燃焼空気供給部2か

ら燃焼部4に配管15が敷設される。燃焼部4には、燃焼した後の排ガスを放出するための配管16が接続される。改質部5には、改質反応に用いられる水分である改質用水sを供給する配管23も接続される。改質部5と変成部6との間には配管17が、変成部6と選択酸化部7との間には配管18が敷設される。選択酸化部7に接続された配管19は三方弁8に接続し、三方弁8からは燃料電池30に至る配管20と配管22に至る配管21とが敷設される。配管22は、燃料電池30と燃焼部4との間に敷設される。

[0024] 原料燃料供給部1は、都市ガス、LPG、消化ガス、メタノール、GTLや灯油のような原料燃料mを定量的に供給する装置である。原料燃料mを貯蔵するタンクを備えていてもよいし、原料燃料mを系外から導入してもよい。都市ガスやLPGのように供給元の気体の圧力が高く維持されている場合には、流量調節弁を備える。供給元の圧力が高くない場合には、ブロワを備え、原料燃料を燃料電池発電システム100内へ供給するための圧力を確保する。また、GTLや灯油のように原料燃料mが液体の場合には、定量ポンプを備えてもよいし、流量調節機能を有さないポンプと流量調節弁とを備えてもよい。原料燃料供給部1は、制御装置40からの指示信号i1により、その原料燃料供給量を増減させる。

[0025] 燃焼空気供給部2は、燃焼部での燃焼で消費される酸素を供給する装置である。ブロワにより大気を燃焼空気aとして送り込む構成でよく、大気中の浮遊物の混入を防止するためのフィルターを有するのが好適である。また、燃焼空気aの供給量を調整するための流量調整弁を有するのが好適である。燃料電池発電システム100では、配管15を介して燃焼部4と接続されているが、燃焼部4に直接接続されていてもよい。

[0026] 改質部5は、原料燃料mと改質用水sから改質反応により水素に富む改質ガスrを生成する装置である。改質反応は、高温下において改質触媒(不図示)により原料燃料m中の炭化水素と水分とから、水素と二酸化炭素、一酸化炭素を生成する反応である。改質反応は、吸熱反応であり、改質反応のために外部より熱を供給する必要がある。改質触媒は、改質反応を促進するものであれば何でもよく、例えばニッケルNi系改質触媒やルテニウムRu系改質触媒などが用いられる。改質部5は、改質触媒を収容した円筒形の容器とするのが、強度的にも製造上も好適である。ただし、高温に

保つために、その内部に、後述する燃焼部4が配置されていてもよい。

[0027] 燃焼部4は、原料燃料m、一酸化炭素が十分に減じられずに選択酸化部7から送出される燃焼用ガスg'あるいは燃料電池30のアノード極のオフガスであるアノードオフガスpを、燃焼空気aと共に燃焼させて、改質部5を加熱する装置である。原料燃料mが灯油などの液体であるときに備え、好適には気化器を有している。灯油、都市ガス、LPGなどの原料燃料m、選択酸化部7から送出される燃焼用ガスg'あるいは燃料電池30のアノードオフガスpと多種の燃料に対応できるバーナーノズルを有している。あるいはそれぞれ異なるバーナーノズルを有していてもよい。改質部5を加熱する装置であるので、改質部5と一体で形成されることが好ましく、改質部5の中央に配置され、燃焼部4で燃焼することにより周囲の改質部5を加熱する構成としてもよいし、燃焼部4で燃焼した高温ガスが改質部5の周囲に流れ改質部5を加熱する構成としてもよく、改質部5を加熱すればどのような構成であってもよい。

[0028] 変成部6は、変成触媒(不図示)の下で改質ガスr中の一酸化炭素を改質ガスr中の水分との変成反応により二酸化炭素と水素を生成する装置である。変成反応は、発熱反応であり、反応温度を低くすれば、変成後の一酸化炭素濃度が低くなるが、反応速度は遅くなる。変成触媒としては、鉄Fe-クロムCr系高温変成触媒、プラチナPt系中高温変成触媒、銅Cu-亜鉛Zn系低温変成触媒などが用いられる。変成部6は、これらの触媒を収容した容器であり、典型的には円筒形をしている。

[0029] 選択酸化部7は、選択酸化触媒(不図示)の下で改質ガスr中の一酸化炭素を、外部より供給される空気(不図示)中の酸素により選択酸化させ、燃料ガスg中の一酸化炭素濃度を低減するための装置である。燃料電池30として、例えば固体高分子形燃料電池を用いると、燃料ガスg中の一酸化炭素により、アノード極(燃料極)のプラチナPt触媒が被毒し、発電効率の低下が起こるという問題がある。そこで、一酸化炭素に対する選択酸化性が高い選択酸化触媒を用いて、一酸化炭素を二酸化炭素に酸化する。選択酸化触媒としては、例えば、プラチナPt系選択酸化触媒、ルテニウムRu系選択酸化触媒などが用いられる。燃料電池システム100では、変成部6と選択酸化部7とを備え、一酸化炭素を低減しているが、いずれか一つの装置だけを備える構成としても、一酸化炭素濃度が低減されればよい。ただし、変成部6と選択酸化部7と

を備えることにより、変成部6で、一酸化炭素濃度が低減させられると共に、燃料としての水素濃度が高められ、更に、選択酸化部7で一酸化炭素濃度が十分に低下させられるので、好適である。

[0030] 燃料電池30は、水素に富む燃料ガスgを燃料ガスとしてアノード極(不図示)に導入し、空気などの酸化剤ガスをカソード極(不図示)に導入して発電を行う装置で、例えば固形高分子形燃料電池が好適に用いられるが、他の形の燃料電池であってもよい。アノード極に導入された燃料ガスg中の水素は、カソード極の酸化剤ガス中の酸素と反応して、水蒸気となるが、水素が総て消費されることはなく、残留水素を含むアノードオフガスpを排出する。アノードオフガスp中に含まれる水素量は、燃料ガスg中に含まれる水素から、燃料電池30で発電に消費された水素を減じたものであるから、発電電流が低減するときには、アノードオフガスp中の水素量が増加する。燃料電池30で発電された電力は、電力ケーブル31を通じて、外部の電気需要(不図示)に供給される。燃料電池30は、制御装置からの制御信号i7により、その発電電流量を増減させる。

[0031] 改質部5、変成部6および選択酸化部7には、それぞれ内部の温度を検知する改質部温度検知器9、変成部温度検知器10および選択酸化部温度検知器11が備えられている。これらの温度検知器9、10、11からは、検知した温度の信号を制御装置40に伝達する信号ケーブルが配線され、改質部温度信号i3、変成部温度信号i4および選択酸化部温度信号i5を制御装置に伝達する。

[0032] 制御装置40は、改質部温度信号i3、変成部温度信号i4および選択酸化部温度信号i5に基き、三方弁3及び三方弁8の作動、燃料電池30での発電電流量並びに原料燃料供給部1からの原料燃料の供給量を制御する。制御装置40は、上記の制御を行うための第3の温度としての改質部運転開始温度A(図2参照)、第4の温度としての変成部運転開始温度B(図2参照)および同じく第4の温度としての選択酸化部運転開始温度C(図2参照)並びに第1の温度としての改質部限界低温温度A1(図3参照)および第2の温度としての改質部限界高温温度A2(図3参照)を記憶する記憶部(不図示)と、改質部温度検知器9、変成部温度検知器10および選択酸化部温度検知器11にて検知した温度から、三方弁3、8、燃料電池30での発電電流量および

原料燃料供給部1から供給される原料燃料mの量を制御する制御部(不図示)とを備える。なお、本実施の形態である燃料電池発電システム100では、一酸化炭素低減部として変成部6と選択酸化部7とを備えるので、第4の温度が変成部運転開始温度B(図2参照)と選択酸化部運転開始温度C(図2参照)との2つとなる。この場合には、変成部6の温度 T_b (図2参照)が変成部運転開始温度B(図2参照)以上と、選択酸化部7の温度 T_c (図2参照)が選択酸化部運転開始温度C(図2参照)以上となること、一酸化炭素低減部(変成部6と選択酸化部7)の温度が所定温度(変成部運転開始温度Bと選択酸化部運転開始温度C)以上になった状態ということになる。

[0033] 三方弁3、8は、一つの入口部と二つの出口部を有する流路切替手段としての弁である。三方弁3は、原料燃料供給部1から供給される原料燃料mを燃焼部4と改質部5とに切り替えて供給する。三方弁8は、選択酸化部7から送出されるガスを燃料ガス g として燃料電池30に供給し、あるいは、燃焼用ガス g' として燃焼部4に供給する切り替えを行う。これらの切替部は、三方弁ではなく、分岐管と仕切弁との組合せで構成してもよいが、三方弁とすると、場所をとらず燃料電池システム100を小型化することができる。三方弁3、8は、ソレノイドあるいはモータ駆動により作動する構成とし、制御装置40からの制御信号 i_2 、 i_6 に従い作動する。

[0034] なお、燃料電池発電システム100では、原料燃料供給部1、燃焼空気供給部2、改質部5、燃焼部4、変成部6、選択酸化部7および三方弁3、8はそれぞれ別の装置で、その間を配管12〜19で接続しているが、これらの装置の総てあるいは一部を燃料処理装置として一体で構成してもよい。それぞれ別の装置で構成すると、装置ごとにメンテナンスを行い、あるいは取り替えることができるので、使い勝手のよいシステムとなる。また、一体の装置とすると、コンパクトなシステムとすることができる。

[0035] 続いて、図2のフロー図を参照して、図1の燃料電池発電システム100の起動運転について説明する。まず、原料燃料供給部1から原料燃料mの供給を開始する。そのときには、三方弁3は、燃焼部4に原料燃料mを供給する状態となっており、原料燃料mは、配管12、三方弁3、配管14を通過して、燃焼部4に供給される。同時に、燃焼空気供給部2から燃焼部4に燃焼空気aを供給する。そこで、燃焼部4では、バーナーノズルから噴出する原料燃料mが着火し、燃焼を開始する(ステップST1)。

- [0036] 燃焼部4での燃焼熱により改質部5が加熱され、改質部5は昇温する(ステップST2)。これが第1の予熱工程に該当する。改質部温度検知器9で検知された温度の信号i3から、制御装置40では、改質部5の温度Taが所定の第3の温度A以上に達しているか否かを判定する(ステップST3)。ここで、第3の温度Aは、原料燃料mが改質反応をする温度より高く設定してある。例えば、改質反応をする温度が650℃のときに、第3の温度Aを700℃に設定する。改質部5の温度Taが第3の温度A以上となると、制御装置40の制御部(不図示)から、原料燃料mを改質器5に供給するように三方弁3を作動する信号i2が三方弁3に送信される(ステップST4)。
- [0037] 原料燃料mが三方弁3により改質部5に供給されることになると、燃焼部4では燃焼するための燃料が供給されなくなるので、燃焼が停止する。一方、改質部5では、改質反応する温度より高い第3の温度A以上に加熱されているので、原料燃料mは、改質反応により水素と一酸化炭素、二酸化炭素に改質される。燃焼部4からの加熱は停止するが、改質部の容器(不図示)や改質触媒(不図示)に蓄熱されているので、温度の低下は緩やかで、更に改質部5が改質反応する温度より高い第3の温度A以上に加熱されており、多少温度が低下しても、改質反応は継続される。改質反応により生成された改質ガスrは、配管17を通して変成部6へ供給される。この時点では、変成部6は温度が低く改質ガスrが供給されても変成反応は行われぬ。ただし、高温の改質ガスrが供給されることにより、徐々に温度が上昇する。改質ガスrは、変成部6に続いて、配管18を通して、選択酸化部7に供給される。選択酸化部7においても、温度が低いため、一酸化炭素選択酸化反応は行われぬ。選択酸化部7も高温の改質ガスrが供給されることにより、徐々に温度が上昇する。
- [0038] 変成部6、選択酸化部7を昇温させた改質ガスrは、配管19から三方弁8に至る。ここで、この改質ガスrは、まだ変成反応も一酸化炭素選択反応も受けていないので、一酸化炭素を多く含有しており、燃料電池30に供給するには適さない。そこで、三方弁8から、燃焼用ガスg'として、配管21へ送られ、配管22を経て、燃焼部4に供給される。燃焼部4では、この燃焼用ガスg'と燃焼空気aにより燃焼を開始する(ステップST5)。すなわち、燃焼部4で燃焼が停止されるのは、三方弁3を配管14側から配管13側に切り替えたときから、切り替えにより改質部5に送られた原料燃料mが改質さ

れ、変成部6、選択酸化部7、三方弁8を経て、燃焼部4に送られるまでの間であり、おおよそ10秒程度である。燃焼部4での燃焼が停止している時間はこの短い時間であるので、改質部5で原料燃料mが改質反応を行い、温度が低下しても、第3の温度A以上の温度から改質反応が行われる最低温度以下にまで低下することがなく、改質反応は継続される。改質反応が継続されると共に、変成部6および選択酸化部7の昇温が継続される(ステップST6)。これが、第2の予熱工程に該当する。

[0039] 変成部温度検知器10および選択酸化部温度検知器11で昇温中の変成部6および選択酸化部7の温度を検知する。検知した変成部6の温度Tbと選択酸化部7の温度Tcとは、信号i4、i5として、制御装置40に伝達される。制御装置40の制御部(不図示)では、変成部温度Tbと記憶部で記憶している第4の温度としての所定の温度Bと比較し、選択酸化部温度Tcと記憶部で記憶している第4の温度としての所定の温度Cと比較する(ステップST7)。ここで、温度Bは、変成部6で変成反応が行われる温度であり、温度Cは、選択酸化部7で一酸化炭素選択酸化反応が行われる温度であり、例えば、銅Cu-亜鉛Zn系変成触媒とプラチナPt系選択酸化触媒を用いる場合には、変成反応に適した温度は200〜280℃程度であり、第4の温度Bは240℃、一酸化炭素選択酸化反応に適した温度は100〜160℃であり、第4の温度Cは110℃とする。なお、同時に、改質部温度Taが第3の温度A以上であることを確認する。これは、三方弁8を切り替えることにより、選択酸化部7から三方弁8、配管21、配管22を経て燃焼部4に供給されていた燃焼用ガスg'の供給が途絶え、燃焼部4が一旦失火するので、その間に改質部5の温度が改質反応に必要な最低温度以下に低下することがないよう、切替時の改質部5の温度を高くしておくためである。燃焼部4が失火して、燃料電池30からのオフガスpが供給され再度着火するまでの時間は、三方弁3を切り替えた場合とは異なるので、改質部温度Taと比較すべき温度は第3の温度Aと異なる温度としてもよい。本実施の形態である燃料電池システム100では、三方弁3を切り替えたときより、三方弁8を切り替えたときの方が、再着火するまでの時間が短いので、改質部温度Taと比較する温度は、第3の温度Aより低くてもよい。

[0040] 検知した温度Tb、Tcが共に所定の温度B、C以上になると、変成部6において改質ガスrが変成反応された変成ガスg1となり、選択酸化部7において変成ガスg1が一

酸化炭素選択酸化反応により一酸化炭素が十分に減少された燃料ガスgとなっている。そこで、制御装置40の制御部(不図示)から、選択酸化部7からのガスを燃料電池30に供給するように三方弁8を作動する信号i6が三方弁8に送信される(ステップST8)。この場合、三方弁8を切り替えることにより、燃焼用ガスg'の燃焼部4への供給が止まり、燃焼部4での燃焼が停止する。しかし、すぐに燃料電池30に供給された燃料ガスgが燃料電池30で発電に利用されることなく、アノードオフガスpとして配管22を通して燃焼部4に送出される。なお、燃料ガスgが燃料電池30に供給された時点で、燃料電池30での発電を少ない発電電流より開始してもよい。そこで、燃焼部4では、燃料ガスgと同じ成分であるが配管22から供給されるアノードオフガスpと燃焼空気aにより燃焼を開始する(ステップST9)。ここで、燃料ガスgの成分を有するアノードオフガスpが燃焼部4に供給されるので、水素濃度も高く、着火し易い。この間の時間は、5秒程度と短いので、前述のように燃焼部4の燃焼停止による改質部5の温度低下は小さく、改質反応は継続される。

[0041] 燃料ガスと同じ成分であるアノードオフガスpにより燃焼部4の燃焼が行われると、改質部5の温度も安定し、原料燃料mは、改質部5で改質され、変成部6および選択酸化部7で一酸化炭素が減じられて、燃料電池30に供給される。そこで、燃料電池30では、発電電流の増段過程を経て、定常的な発電が開始される(ステップST10)。これが、発電工程に該当する。燃料電池30で発電が開始された後は、燃料電池30で燃料ガスgを発電に利用し、そのアノードオフガスpが配管22を通して燃焼部4に供給され、燃焼部4での燃焼は継続される。燃料電池30に供給される燃料ガスgは、変成反応および一酸化炭素選択酸化反応を受けているので一酸化炭素濃度が十分に低く、燃料電池30に供給しても燃料電池30のアノード極(燃料極)のプラチナPt触媒が被毒することもなく、好適である。

[0042] 上記の起動方法によれば、アシスト燃焼系を備えることなく、一酸化炭素により燃料電池30等を損傷することなく、燃料電池発電システム100を起動することができる。また、始めに原料燃料mを燃焼部4に供給して改質部5を昇温するときを除いて、原料燃料mを燃焼せず、燃焼部4では、改質ガスrあるいはアノードオフガスpなどを燃焼しているので、燃焼部4から排気されるガスも、NO_xやSO_xを含まないクリーンなガ

スとなり、環境保護の観点からも好適である。

- [0043] 続いて、図3を参照して、図1の燃料電池発電システム100の外乱要因に対する制御方法について説明する。例えば、原料燃料流量計の指示誤差、原料燃料mの品質のばらつきなどにより、改質部5の温度が変化することがある。改質部5の温度の変化が大きいと、改質反応が適切に行われなくなる恐れがある。そこで、改質部5の温度を所定の範囲内に保持するための調整を行わなければならない。
- [0044] 改質部5の温度が低下した場合、温度を上昇するには、燃焼部4での燃焼量を増大することが考えられる。そのために原料燃料mの供給量を増加すると、改質部5での改質反応が盛んになるために吸熱が進み更に改質部5の温度が低下する。更に、改質反応には改質用水sの供給が必要であり、原料燃料mの供給量の増大と共に、改質用水sの供給量も増大しなければならず、システムとしての変動が大きくなり運転が不安定になる恐れもある。
- [0045] そこで、改質部5の温度が低下した場合には、燃料電池30における発電電流を低減する。発電電流の低減は、燃料電池30で消費される水素量の減少を招来するので、その結果アノードオフガスpに含有される残留水素量が増加する。アノードオフガスp中の水素量が増加すると、燃焼部4での燃焼量が増え、改質部5の温度が上昇する。逆に改質部5の温度が上昇したときには、発電電流を増やせば、アノードオフガスp中の水素量が減少し、燃焼部4での燃焼量が減少して、改質部5の温度が低下する。この改質部5の温度変化は、燃焼部4での燃焼量の変化が発電電流の増減からすぐに発生するので、応答が速く、燃料電池システム100の運転制御方法として好適である。
- [0046] 具体的な制御を図3に従って説明する。改質部温度検知器9で検知した温度は、信号i3として、制御装置40の制御部に伝達される。制御部では、先ず、記憶部に記憶された所定の第1の温度A1と検知された改質部温度Taとを比較する(ステップST11)。改質部温度Taが第1の温度A1以下のときには、燃料電池30での発電電流を低減する工程を実施し、第1の温度A1を超えているときには所定の第2の温度A2との比較を行う。
- [0047] 燃料電池30での発電電流を低減する工程では、制御装置40の制御部において、

発電電流を増大した連続回数N2を0にリセットする(ステップST21)。発電電流を低減した後、発電電流を増大する工程を実施することになった場合に連続して発電電流を増大した回数N2のカウントを誤らないためである。なお、図3では、上記のステップST21を発電電流の低減工程の最初に行っているが、発電電流の低減工程中に行えば、どの段階で行ってもよい。

[0048] 次に制御装置40の制御部より発電電流値を所定量a1だけ低減するための指示信号i7が燃料電池30に伝達される。燃料電池30では、制御信号i7を受け、発電電流を低減する(ステップST22)。低減する所定量a1は、例えば起動時に設定された発電電流値の2%という小さな値に設定する。発電電流値を大きく変化させると急激な変化のためにシステムの運転が不安定になる恐れがあり、徐々に調整するために小さな値に設定する。

[0049] 次に、制御装置40の制御部において、発電電流を低減した連続回数N1に1を加算する(ステップST24)。後述のように、発電電流を低減しても改質部5の温度Taが所定の第1の温度A1より高温とならない場合に、原料燃料mの供給量を増加するときの判定に用いるためである。連続回数N1が所定の回数n1に達していなければ、改質部温度Taと第1の温度A1との比較(ステップ11)に戻る。

[0050] ただし、次の改質部温度Taと第1の温度A1との比較(ステップ11)を行う前に、発電電流を低減した状態を所定時間t1保持する。そのため、制御装置40の制御部において、タイマーで所定時間t1をカウントする(ステップST23)。発電電流値を所定量a1だけ低減した状態を安定させるためである。すなわち、発電電流を低減した直後に生じる過渡的な変化に基いて更なる制御を行うと、システムの運転が不安定になる恐れがあるからである。特に燃焼量の低減量に対して改質部5の熱容量が大きい場合、PID制御方式のように絶えずフィードバックを行うと、改質部5の温度のハンチングが起きる恐れがある。ここで、所定時間t1は、1〜5kWの発電能力を有する小型の燃料電池発電システム100においては、30秒程度でよく、所定時間t1の間にシステムの運転に支障が生じるような大きな変化が起きることは考えにくい。ここまでの、発電電流低減工程に該当する。

[0051] 次に、改質部温度Taが第1の温度A1を超えている場合について説明する。先ず、

制御装置40の制御部において、改質部温度 T_a と所定の第2の温度 A_2 との比較を行う(ステップST12)。改質部温度 T_a が第2の温度 A_2 以上でなければ、改質部5の温度が適正範囲内であるということで、そのまま運転を続けるが、改質部温度 T_a が第2の温度 A_2 以上であれば、発電電流増大工程を実施する。発電電流低減工程とは反対に、燃料電池30での水素消費量を増やし、アノードオフガス p 中の水素量を減少し、燃焼部4での燃焼を抑えるためである。

[0052] 発電電流増大工程では、発電電流を低減した連続回数 N_1 を0にリセットし(ステップST31)、発電電流値を所定量 a_2 だけ増大し(ステップST32)、発電電流を増大した連続回数 N_2 に1を加算する(ステップST34)。そして、次の改質部温度 T_a と第1の温度 A_1 との比較(ステップ21)を行う前に、発電電流を増大した状態を所定時間 t_2 保持する(ステップST33)。これらの工程の詳細は、発電電流低減工程と同様であるので、詳細な説明は省略する。なお、発電電流値を低減する所定量 a_1 と増大する所定量 a_2 とは、同じであってもよいし、異なってもよい。また、発電電流を低減した状態を保持する所定時間 t_1 と増大した状態を保持する所定時間 t_2 とは、同じであってもよいし、異なってもよい。

[0053] 続いて、発電電流を低減した連続回数 N_1 が所定の回数 n_1 に達し、あるいは、発電電流を増大した連続回数 N_2 が所定の回数 n_2 に達した場合の運転について説明する。発電電流を低減した連続回数 N_1 とは、発電電流を低減し、その後に改質部温度 T_a が第2の温度 A_2 を超えることなく、再度第1の温度 A_1 以下となった回数のことである。すなわち、発電電流を低減し、アノードオフガス p 中の水素量を増やしたものの、未だ燃焼部4での燃焼が充分でなく改質部5の温度が低下してしまう状態が生じた回数である。発電電流を低減する回数が重なると燃料電池30での発電量の減少が大きくなり、外部の電気需要における需要量を満足できなくなる恐れがある。

[0054] そこで、発電電流を低減した回数 N_1 が、所定の連続回数 n_1 に達した場合には、原料燃料供給部1からの原料燃料 m の供給量を増加して、アノードオフガス p の量を増加し、燃焼部4での燃焼を増やし、改質部5の温度を上昇させることにする。原料燃料 m の供給量を増やすと、改質部5への改質用水 s の供給量も増やさなければならず、改質部5の温度が一時的に低下するが、燃焼部4での燃焼量が増えるので、次

第に温度は上昇する。このように、発電電流の調整で対処できないときには、原料燃料m供給量を調整する機能を有することで、システムの安定運転への信頼性が向上する。例えば、発電電流の所定低減量を起動時発電電流の2%とし、所定の連続回数 $n1$ を5回とすると、発電電流が10%低下すると、原料燃料mの供給量が増加され、発電電流の変動は10%以内に抑えられることになる。また、このときには、増加する原料燃料mの供給量を、起動時燃料の10%とすれば、原料燃料mの供給量が適切な範囲に保たれる。

[0055] 図3のフロー図を参照して、具体的な運転の制御について説明する。制御装置40の制御部で、発電電流を低減した回数 $N1$ が、所定の連続回数 $n1$ と等しくなったか否かを判定する(ステップST25)。発電電流を低減した回数 $N1$ が、所定の連続回数 $n1$ と等しくなった場合には、制御装置40の制御部から原料燃料流量値を所定量 $f1$ だけ増加するための制御信号 $i1$ が原料燃料供給部1に伝達される。そこで、原料燃料供給部1では、指示信号 $i1$ を受け、定量流量ポンプの流量を増加しあるいは流量調節弁で流量を調節して、原料燃料流量値を増加する(ステップ26)。原料燃料流量値を増加すると共に、制御装置40の制御部では、発電電流を低減した回数 $N1$ を0に戻す(ステップST27)。そして、再度改質部温度 Ta と第1の温度 $A1$ との比較(ステップST11)に戻る。ただし、その前に発電電流を低減し、原料燃料mを増加した状態を所定時間 $t1$ 保持する。そのため、制御装置40の制御部において、タイマーで所定時間 $t1$ をカウントする(ステップST23)。発電電流を低減し、原料燃料mを増加した状態での運転が安定する時間を確保するためである。

[0056] 発電電流を増大した連続回数 $N2$ が所定の回数 $n2$ に達した場合は、上記の発電電流を低減した連続回数 $N1$ が所定の回数 $n1$ に達した場合と反対に原料燃料供給部1からの原料燃料mの供給量を減少し(ステップST36)、発電電流を増加した回数 $N2$ を0に戻す(ステップST37)。原料燃料mの供給量と共に、供給する改質用水量も減少する。その結果、燃焼部4での燃焼量が減少して、改質部5の温度は低下することになる。詳細な説明は、上記の原料燃料m供給量を増加する場合と同様であるので、省略する。

[0057] 以上のように、発電電流を低減した連続回数 $N1$ あるいは発電電流を増大した連続

回数N2が所定回数n1、n2に達したら、原料燃料mの供給量を調整することで、燃料電池30の発電電流を一定の範囲内に保持することができ、外部の電力需要の要求を満たす燃料電池発電システム100となる。

請求の範囲

- [1] 原料燃料を改質して改質ガスを生成する改質部と、前記原料燃料を燃焼して前記改質部を加熱する燃焼部と、前記改質ガス中の一酸化炭素を低減して一酸化炭素低減ガスを生成する一酸化炭素低減部と、前記一酸化炭素低減ガスを燃料ガスとする燃料電池とを備える燃料電池システムの運転方法であって；
- 前記原料燃料を前記燃焼部に供給して前記改質部を所定の温度に加熱する第1の予熱工程と；
- 前記第1の予熱工程に続いて、前記原料燃料の燃焼部への供給を停止し、前記原料燃料を前記改質部に供給して改質ガスを生成し、前記改質ガスを前記一酸化炭素低減部に導入して前記一酸化炭素低減部を加熱する第2の予熱工程と；
- 前記第2の予熱工程の後に、前記一酸化炭素低減部で生成した一酸化炭素低減ガスを前記燃料電池に導入して発電する発電工程とを備える；
- 燃料電池システムの運転方法。
- [2] 前記一酸化炭素低減部の温度が所定の温度以上となったときに、前記第2の予熱工程から前記発電工程へ移行する；
- 請求項1に記載の燃料電池システムの運転方法。
- [3] 原料燃料を供給する原料燃料供給部と、前記原料燃料を改質して改質ガスを生成する改質部と、前記改質ガス中の一酸化炭素を低減して一酸化炭素低減ガスを生成する一酸化炭素低減部と、前記一酸化炭素低減ガスを燃料ガスとする燃料電池と、前記燃料電池のオフガスを燃焼して前記改質部を加熱する燃焼部とを備える燃料電池システムの運転方法であって；
- 前記改質部の温度を検知し、検知された温度を所定の第1の温度及び所定の第2の温度と比較する改質部温度比較工程と；
- 前記改質部温度比較工程における前記検知された温度が前記第1の温度以下のときに前記燃料電池において発電電流を低減する工程であって、前記発電電流を低減した後所定の時間は発電電流を保持する電流低減工程と；
- 前記改質部温度比較工程における前記検知された温度が前記第2の温度以上のときに、前記燃料電池において発電電流を増大する工程であって、前記発電電流を

増大した後所定の時間は発電電流を保持する電流増大工程とを備える；

燃料電池システムの運転方法。

- [4] 前記電流低減工程の連続実施回数が所定回数に達したときに、前記原料燃料供給部からの原料燃料の供給量を増加する燃料増大工程と；

前記電流増大工程の連続実施回数が所定回数に達したときに、前記原料燃料供給部からの原料燃料の供給量を減少する燃料減少工程とを備える；

請求項3に記載の燃料電池システムの運転方法。

- [5] 原料燃料を供給する原料燃料供給部と；

前記原料燃料を改質して改質ガスを生成する改質部と；

前記改質ガス中の一酸化炭素を低減して一酸化炭素低減ガスを生成する一酸化炭素低減部と；

前記一酸化炭素低減ガスを燃料ガスとする燃料電池と；

前記原料燃料、前記一酸化炭素低減ガスまたは前記燃料電池のオフガスを燃焼して前記改質部を加熱する燃焼部と；

前記原料燃料を前記燃焼部に供給する流路と；

前記原料燃料を前記改質部に供給する流路と；

前記一酸化炭素低減ガスを前記燃料電池に供給する流路と；

前記一酸化炭素低減ガスを前記燃焼部に供給する流路と；

前記燃料電池のオフガスを前記燃焼部に供給する流路と；

前記原料燃料を前記燃焼部に供給する流路と前記改質部に供給する流路とを切り替える第1の流路切替手段と；

前記一酸化炭素低減ガスを前記燃料電池に供給する流路と前記燃焼部に供給する流路とを切り替える第2の流路切替手段とを備える；

燃料電池システム。

- [6] 前記改質部の温度を検知する改質部温度検知器と；

前記一酸化炭素低減部の温度を検知する一酸化炭素低減部温度検知器と；

前記改質部温度検知器で検知された温度と比較される第1、第2及び第3の温度並びに前記一酸化炭素低減部温度検知器で検知された温度と比較される第4の温度

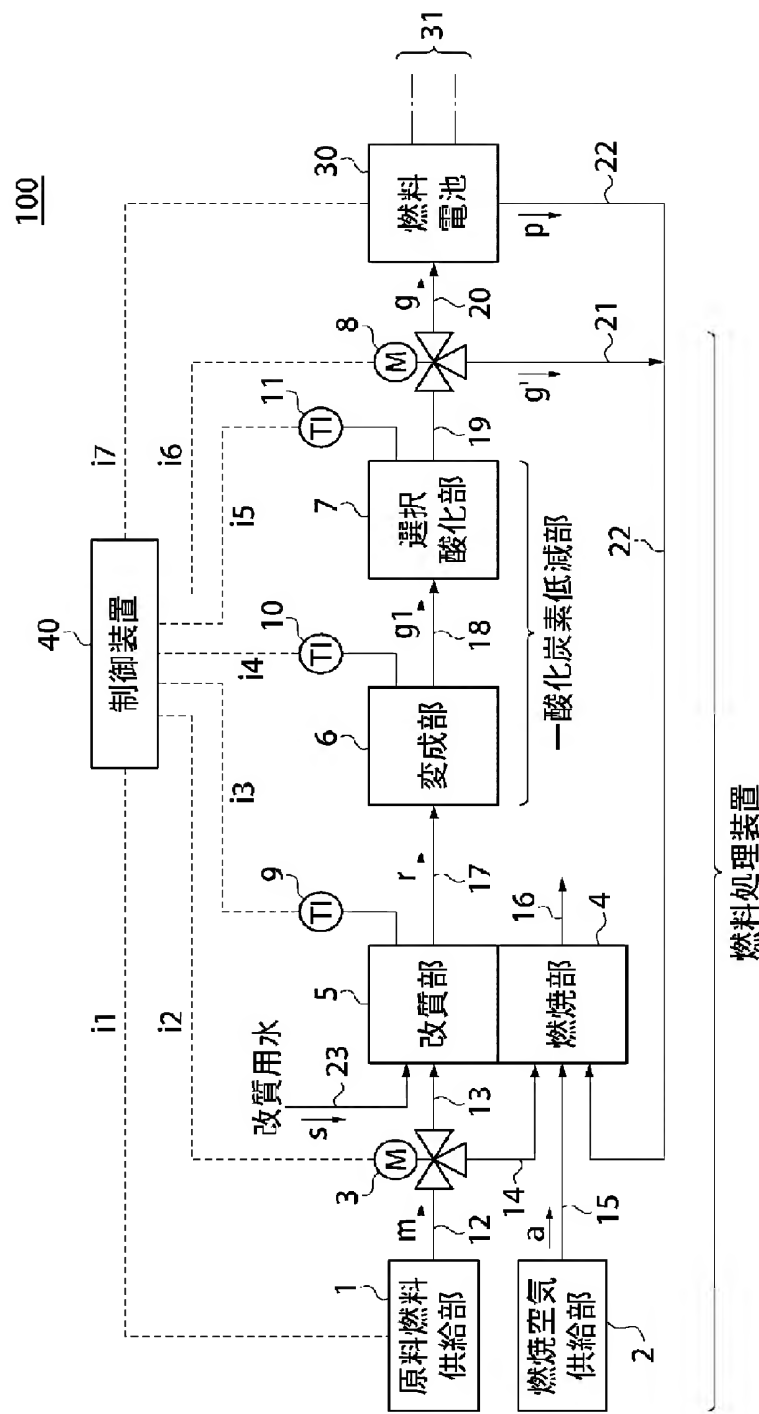
を記憶する記憶部と、

起動時に、前記原料燃料を前記燃焼部に供給して前記改質部温度検知器で検知された温度が第3の温度以上となると、前記原料燃料の燃焼部への供給を停止し、前記原料燃料を前記改質部に供給して改質ガスを生成し、前記改質ガスを前記一酸化炭素低減部に導入して前記一酸化炭素低減部を加熱し、また、前記一酸化炭素低減部温度検知器で検知された温度が第4の温度以上となると、前記一酸化炭素低減部で生成される一酸化炭素低減ガスを前記燃料電池に導入し発電を開始する制御を行い、

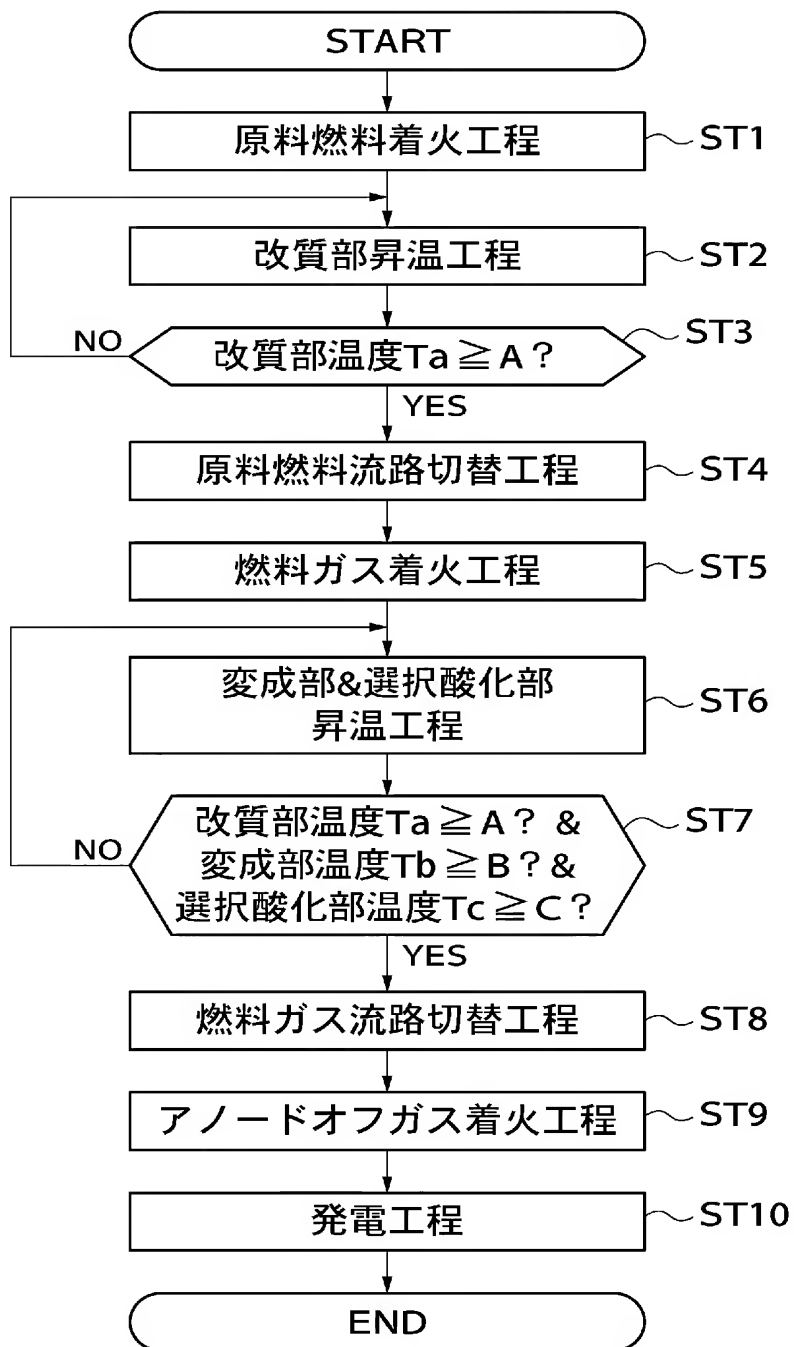
通常運転時に、前記改質部温度検知器で検知された温度が前記第1の温度以下のときに前記燃料電池において発電電流を低減するが、前記発電電流を低減した後所定の時間は発電電流を保持し、また、前記改質部温度検知器で検知された温度が前記第2の温度以上のときに、前記燃料電池において発電電流を増大するが、前記発電電流を増大した後所定の時間は発電電流を保持し、且つ、連続して発電電流を低減あるいは増大した回数が所定の回数に達すると前記原料燃料供給部から供給する原料燃料の供給量を増加あるいは減少する制御を行う制御部とを有する制御装置とを備える；

請求項5に記載の燃料電池システム。

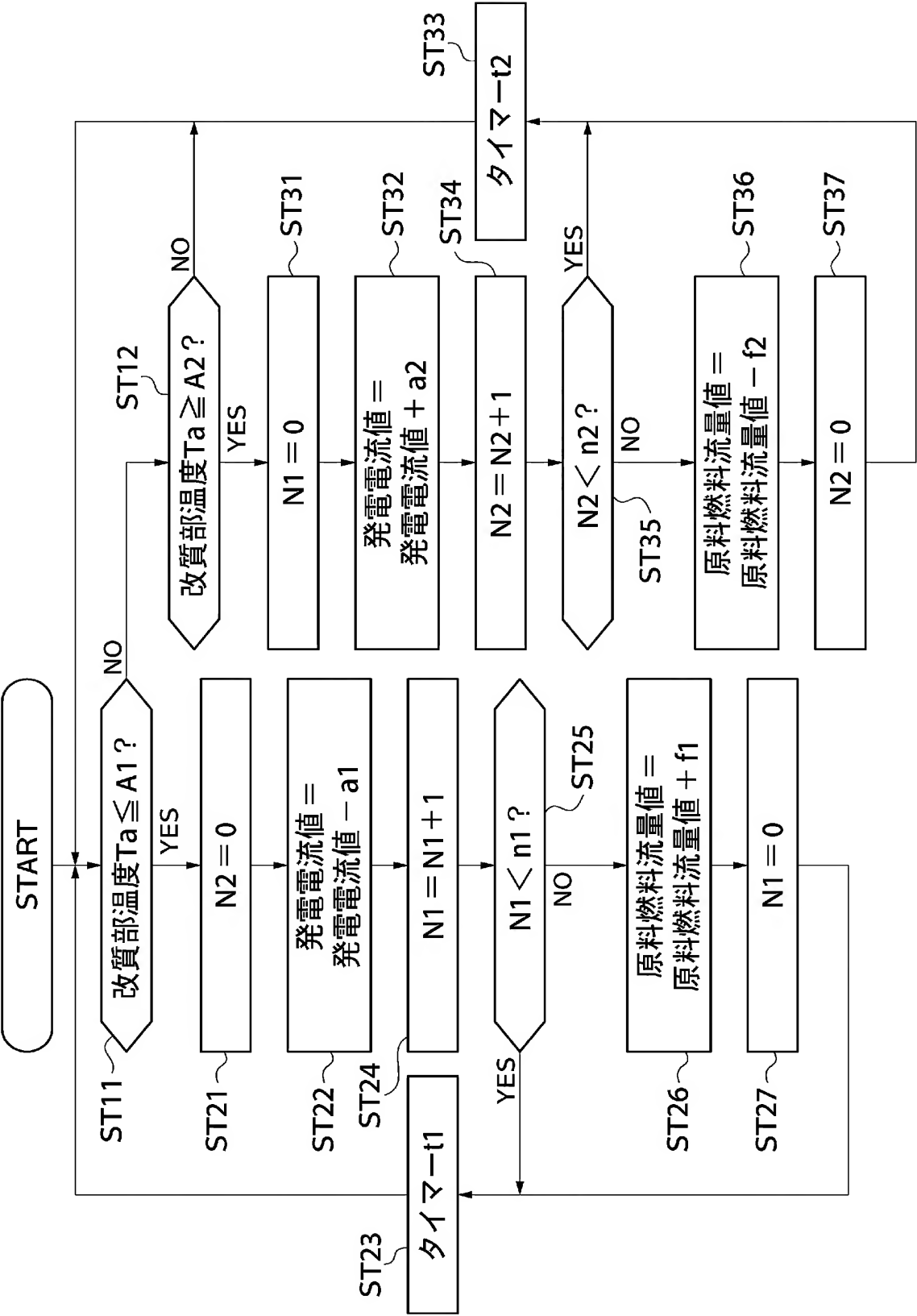
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/018496

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ H01M8/04, H01M8/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ H01M8/04, H01M8/06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2005 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 11-265725 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 28 September, 1999 (28.09.99), Par. Nos. [0010] to [0024], [0028] to [0032]; Figs. 1 to 2 (Family: none)	1-2, 5 3 4, 6
X Y	JP 9-63618 A (Yamaha Motor Co., Ltd.), 07 March, 1997 (07.03.97), Par. Nos. [0021] to [0032]; Fig. 1 (Family: none)	5 3
X Y	JP 2003-203658 A (Osaka Gas Co., Ltd.), 18 July, 2003 (18.07.03), Par. Nos. [0025] to [0033]; Fig. 2 (Family: none)	5 3

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
02 March, 2005 (02.03.05)

Date of mailing of the international search report
22 March, 2005 (22.03.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/018496

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 2002-289226 A (Osaka Gas Co., Ltd.), 04 October, 2002 (04.10.02), Full text; Figs. 1 to 7 (Family: none)	3 4, 6
A	JP 2001-35517 A (Mitsubishi Kakoki Kaisha, Ltd.), 09 February, 2001 (09.02.01), Full text; Fig. 1 (Family: none)	4, 6
P, A	JP 2004-196600 A (Babcock-Hitachi Kabushiki Kaisha), 15 July, 2004 (15.07.04), (Family: none)	1-6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/018496

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

In order for a group of inventions claimed in claims to satisfy the requirement of unity of invention, there must be special technical features for linking the group of inventions so as to form a single general inventive concept. For the reason set forth in the 'extra sheet', it is apparent that there exist no special technical features for the group of inventions claimed in this international application, and that this group of inventions do not satisfy the requirement of unity of invention.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/018496

In order for a group of inventions claimed in claims to satisfy the requirement of unity of invention, there must be special technical features for linking the group of inventions so as to form a single general inventive concept. In this connection, it appears that the group of inventions claimed in claims 1-6 are linked with each other only in the matter "fuel cell system including a reforming unit capable of reforming raw fuel into reformed gas; a combustion unit capable of combusting the raw fuel and heating the reforming unit; a carbon monoxide reduction unit capable of reducing the content of carbon monoxide in the reformed gas to thereby produce gas with reduced content of carbon monoxide; and a fuel cell using the gas with reduced content of carbon monoxide as a fuel gas".

However, this matter cannot be a special technical feature because it is described in prior art references, for example, JP 9-63618 A (Yamaha Motor Co., Ltd.) 07 March, 1997 (07.03.97), JP 11-265725 A (Sanyo Electric Co., Ltd.) 28 September, 1999 (28.09.99) and JP 2003-203658 A (Osaka Gas Co., Ltd.) 18 July, 2003 (18.07.03).

Consequently, there exist no special technical features for linking the group of inventions claimed in claims 1-6 so as to form a single general inventive concept. Therefore, it is apparent that this group of inventions do not satisfy the requirement of unity of invention.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M 8/04, H01M 8/06

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M 8/04, H01M 8/06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2005年

日本国登録実用新案公報 1994-2005年

日本国実用新案登録公報 1996-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y A	JP 11-265725 A(三洋電機株式会社)1999.09.28, 【0010】～【0024】 , 【0028】～【0032】 , 【図1】～【図2】 (ファミリーなし)	1～2, 5 3 4, 6
X Y	JP 9-63618 A(ヤマハ発動機株式会社)1997.03.07, 【0021】～【0032】 , 【図1】 (ファミリーなし)	5 3
X Y	JP 2003-203658 A(大阪瓦斯株式会社)2003.07.18, 【0025】～【0033】 , 【図2】 (ファミリーなし)	5 3

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02.03.2005

国際調査報告の発送日

22.3.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小川 進

4 X

8414

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	JP 2002-289226 A(大阪瓦斯株式会社)2002. 10. 4, 全文, 【図1】～ 【図7】(ファミリーなし)	3 4, 6
A	JP 2001-35517 A(三菱化工機株式会社)2001. 02. 09, 全文, 【図1】 (ファミリーなし)	4, 6
P, A	JP 2004-196600 A(バブコック日立株式会社)2004. 07. 15(ファミリー なし)	1～6

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項(PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、(特別ページ)に記載したように、この国際出願の請求の範囲に記載されている一群の発明には、特別な技術的特徴は存在しておらず、単一性の要件を満たしていないことは明らかである。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、請求の範囲1～6に記載されている一群の発明は、「原料燃料を改質して改質ガスを生成する改質部と、前記原料燃料を燃焼して前記改質部を加熱する燃焼部と、前記改質ガス中の一酸化炭素を低減して一酸化炭素低減ガスを生成する一酸化炭素低減部と、前記一酸化炭素低減ガスを燃料ガスとする燃料電池とを備える燃料電池システム」という事項でのみ連関していると認める。

しかしながら、この事項は先行技術文献、例えば、JP 9-63618 A(ヤマハ発動機株式会社)1997.03.07やJP 11-265725 A(三洋電機株式会社)1999.09.28やJP 2003-203658 A(大阪瓦斯株式会社)2003.07.18等、に記載されているため、特別な技術的特徴とはなり得ない。

そうすると、請求の範囲1～6に記載されている一群の発明の間には、単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴は存在しておらず、単一性の要件を満たしていないことは明らかである。